

# METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURE OF ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

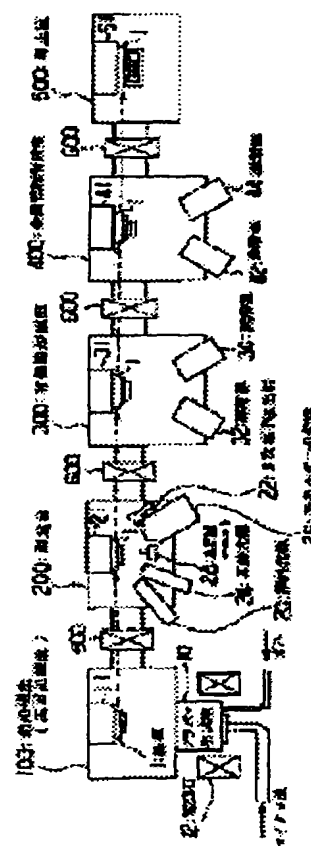
**Patent number:** JP2000277256  
**Publication date:** 2000-10-06  
**Inventor:** ISHII MASAHIKO; TOKITO SEIJI; TAGA YASUNORI  
**Applicant:** TOYOTA CENTRAL RES & DEV  
**Classification:**  
**- international:** H05B33/10; H05B33/14; H05B33/28; H05B33/10; H05B33/14; H05B33/26; (IPC1-7): H05B33/10; H05B33/14; H05B33/28  
**- european:**  
**Application number:** JP19990077929 19990323  
**Priority number(s):** JP19990077929 19990323

第 91102254 號  
 初審 (訴願) 引証附件  
 再審

Report a data error here

## Abstract of JP2000277256

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To manufacture an organic EL element with good reproducibility. **SOLUTION:** In the manufacture of an organic EL element furnished on a base board with a transparent electrode, an organic layer which includes a light emitting layer, and a metal electrode, an ITO transparent electrode formed on the base board is subjected to surface treatment so that the work function, cleanliness, and planarity of the ITO electrode are enhanced. After surface processing, the base board is carried into a measuring chamber 200 without exposing to the atmosphere, and there the cleanliness (XPS), flatness (AFM), and work function of the ITO electrode surface are measured. The obtained values are checked as to whether they meet the prescribed conditions. If the answer is yes, the board measured is transported to an organic layer forming chamber 300 as the next stage, without being exposed to the atmosphere so that an organic layer is formed on the transparent electrode surface after surface processing, and further a metal electrode is formed in a metal electrode forming chamber 400.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板上に、透明電極、発光層を含む有機層及び金属電極を備える有機電界発光素子の製造方法であり、

前記基板上に形成された前記透明電極表面に前記有機層を形成する前に、真空雰囲気下で、前記透明電極に対して表面処理を行い、次に、大気に曝すことなく該表面処理後の透明電極表面の清浄性及び平坦度及び前記透明電極の仕事関数を測定し、

測定した清浄性、平坦度及び仕事関数が所定条件を満たす場合に、大気に曝すことなく前記表面処理後の透明電極表面に前記有機層を形成することを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【請求項 2】 基板上に、透明電極、発光層を含む有機層及び金属電極を備える有機電界発光素子を製造する製造装置であり、

前記透明電極の形成された前記基板を受け入れて、真空雰囲気下で、前記透明電極に対して表面処理を行う表面処理室と、

前記表面処理が行われた前記透明電極を有する基板を大気に曝すことなく受け入れて、前記表面処理後の透明電極表面の清浄性、平坦度及び前記透明電極の仕事関数を測定する測定室と、

測定した清浄性、平坦度及び仕事関数が所定条件を満たす場合に、大気に曝すことなく搬入される前記測定後の基板に対し、該表面処理後の透明電極表面に前記有機層を形成する有機層形成室と、

を備えることを特徴とする有機電界発光素子の製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、有機電界発光素子（以下有機 EL 素子という）、特に、再現性の良い有機 EL 素子を製造するための方法、製造装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 自発光性の有機 EL 素子は、平面光源や、次世代のフラットパネルディスプレイなどとして注目されている。

【0003】 この有機 EL 素子は、図 6 に例示するように、ガラス基板上に陽極である透明電極、陰極である金属電極を備え、透明電極と金属電極との間に有機蛍光体層（有機層）を備える。有機蛍光体層は、図 6（a）のように、正孔輸送層および発光層からなる 2 層構造や、図 6（b）のように正孔輸送層、発光層及び電子輸送層からなる 3 層構造などが採用される。

【0004】 透明電極としては、光の透過率が 80% 以上でシート抵抗として  $30 \Omega/\square$  以下の透明導電性材料が要求され、ITO（Indium Tin Oxide）が最も一般的に用いられる。

【0005】 このような有機 EL 素子は、電流注入型の

素子であるため、その発光特性は各電極と有機層との界面の状態に大きく依存する。従って、ITO の表面状態の制御は、有機 EL 素子の高効率化、高安定化といった特性の向上を図る上での重要な技術の一つである。

【0006】 ここで、制御すべき ITO の表面状態としては、(i) 清浄性、(ii) 平坦性、および、(iii) 仕事関数が挙げられる。

【0007】 (i) 清浄性の制御に関しては、プラズマを ITO 電極に照射することにより表面を清浄化し、プラズマ処理後大気に基板をさらすことなく有機層を形成する方法が開示されている（特開平 7-142168 号公報）。また、プラズマの代わりにラジカルビーム源からの中性活性種を照射する方法も開示されている（特開平 10-158816 号公報）。

【0008】 (ii) 平坦性に関しては、ITO 電極表面の平坦性を JIS B0601 に規定される 10 点平坦粗さで定義される平坦度で、ITO 上に成膜される有機層の膜厚の  $1/10 \sim 1/100$  の範囲にすることにより、素子の長寿命化が図られることが開示されている（特開平 4-87187 号公報）。また、この公報において、ITO の平坦度の調整は ITO 表面を研磨することにより行われている。一方、プラズマを照射することによっても ITO 表面が平坦化されることが報告されている（第 45 回応用物理学会講演予稿集 p 634（1998））。

【0009】 (iii) 仕事関数に関しては、正孔輸送層と ITO 電極の間のエネルギー障壁を小さくするために、ITO 電極の仕事関数は大きい方が好ましい。しかし、従来では、ITO 自体の仕事関数を大きくするのではなく、ITO と正孔輸送層との間に仕事関数の大きな第 3 の薄膜を正孔注入層として挿入する方法が検討されている（特開昭 63-295695 号公報、特開平 10-95971 号公報、特開平 8-193191 号公報、特開平 9-063771 号公報など）。最近、ITO 表面をプラズマ処理することにより ITO 表面の仕事関数が大きくなることが報告された（C.C.Wu, et al., J. Appl. Phys. 70(1997)1348, J.S.Kim, et al., J. Appl. Phys. 84(1998)6859）。

## 【0010】

【発明が解決しようとする課題】 プラズマやラジカルビームを ITO 電極表面に照射した後、大気にさらすことなく有機層を形成しても、電極表面の汚染の程度が基板によって異なるため、清浄化のための表面処理条件を最適化することが困難である。

【0011】 また、プラズマを照射する場合には、前述したように ITO 表面を平坦化する効果も有するが、過度のプラズマ照射は逆に平坦性を悪化させる。従って、あらかじめ表面研磨などによって ITO 表面の平坦性を調整していたとしても、最初の表面状態が異なれば、表面処理を行うことで平坦性をかえって低下させてしまう

(19) 日本国特許庁 (J P)

# (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-277256

(P 2 0 0 0 - 2 7 7 2 5 6 A)

(43) 公開日 平成12年10月6日 (2000.10.6)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>

識別記号

F I

テマコード (参考)

H05B 33/10

H05B 33/10

3K007

33/14

33/14

A

33/28

33/28

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全11頁)

(21) 出願番号

特願平11-77929

(22) 出願日

平成11年3月23日 (1999.3.23)

(71) 出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地  
地の1

(72) 発明者 石井 昌彦

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 時任 静士

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(74) 代理人 100075258

弁理士 吉田 研二 (外2名)

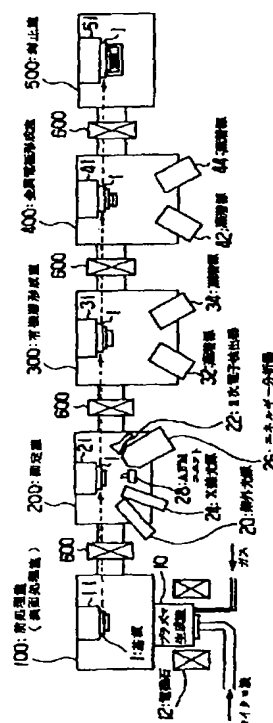
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子の製造方法及び有機電界発光素子の製造装置

(57) 【要約】

【課題】 再現性良く有機EL素子を製造すること。

【解決手段】 基板上に、透明電極、発光層を含む有機層及び金属電極を備える有機EL素子を製造するにあたり、基板上に形成されたITO透明電極に対して表面処理を行って該ITO電極の仕事関数、清浄性及び平坦性を向上させる。さらに、表面処理後、基板を大気に曝すことなく測定室200に搬入し、ここでITO電極表面の清浄性(XPS)、平坦度(AFM)及び仕事関数を測定する。測定した清浄性、平坦度及び仕事関数が所定条件を満たすかどうか確認し、満たしている場合に、被測定基板を大気に曝されることなく次の有機層形成室300に搬送し表面処理後の透明電極表面に有機層を形成し、金属電極形成室400でさらに金属電極が形成される。



恐れがある。

【0012】また、第3の薄膜を正孔注入層として挿入する方法では、耐久性、特に高温での安定性に問題があったり、正孔注入層の電気抵抗が高かったり、あるいは光の透過率が低いために発光効率を低くしてしまうなどの様々な課題がある。

【0013】従って、特性のよい有機EL素子を得るために陽極としてのITO電極には、表面の清浄性と平坦性を向上し、さらに第3薄膜からなる正孔注入層を挿入することなく、なるべく仕事関数を大きくすることが望まれている。しかし、単に表面処理を行うだけでは、上述のように清浄性や平坦性だけ見た場合でも、再現性のある表面処理、又は最適化された表面処理を行うことは困難である。そして、今までに、透明電極の清浄性、平坦性および仕事関数の全てを制御して有機EL素子を作製する試みは行われてこなかった。

【0014】本発明は上記課題を解決するためになされ、再現性よく有機EL素子を製造すること、つまり一定の特性の有機EL素子を安定して製造する方法及び製造装置の提供を目的とする。

【0015】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するためにこの発明は、以下のような特徴を備える。

【0016】有機EL素子の製造方法に係る発明において、該有機EL素子は基板上に透明電極、発光層を含む有機層及び金属電極を備え、該基板上に形成された透明電極表面に有機層を形成する前に、真空雰囲気下にて、透明電極に対して表面処理を行う。続けて、大気に曝すことなく該表面処理後の透明電極表面の清浄性と平坦度及び前記透明電極の仕事関数を測定する。さらに測定した清浄性、平坦度及び仕事関数が所定範囲内である場合に、続けて大気に曝すことなく前記表面処理後の透明電極の表面に前記有機層を形成する。

【0017】また、本発明の有機EL素子の製造装置は、基板上に、透明電極、発光層を含む有機層及び金属電極を備える有機EL素子を製造する装置であって、表面処理室、測定室及び有機層形成室を有する。表面処理室は、前記透明電極の形成された前記基板を受け入れて、真空雰囲気下で、前記透明電極に対して表面処理を行う。また、測定室は、表面処理が行われた前記透明電極を有する基板を大気に曝すことなく受け入れて、前記表面処理後の透明電極表面の清浄性、平坦度及び前記透明電極の仕事関数を測定する。測定した清浄性、平坦度及び仕事関数が所定条件を満たす場合には、前記測定後の基板は有機層形成室に大気に曝されることなく搬送され、有機層形成室において、前記表面処理後の透明電極表面に前記有機層が形成される。なお、各処理が行われる処理室は、1室ずつには限らず、一部共通であってもよいし、反対に、同種類の処理を複数の処理室で行う構成でもよい。

【0018】本発明において、上記表面処理としては、例えば、プラズマ照射、ラジカルビーム照射、イオンビーム照射を用いることが好適である。プラズマ照射の場合、プラズマ源は13.56MHzのRF（高周波）プラズマか2.45GHzのマイクロ波を利用したECR（電子サイクロトロン共鳴）プラズマのいずれでも採用可能であり、特に、基板（透明電極）への低損傷化という点でECRプラズマが好ましい。

【0019】また、本発明において透明電極の仕事関数の測定には、光照射に伴う光電子放出を利用したイオン化ポテンシャル測定装置あるいは紫外光電子分光装置を用いることができる。

【0020】さらに、透明電極の表面の清浄性の測定には、X線光電子分光法（XPS）を用いることができる。

【0021】また、透明電極の表面の平坦性の測定には、原子間力顕微鏡（AFM）あるいは走査トンネル顕微鏡（STM）を用いることができる。

【0022】本発明において、陽極として用いる透明電極には、透明導電性材料であるインジウムスズ酸化物（ITO）を用いることができる。

【0023】ITO透明電極を表面処理した後、有機層形成工程へ進むために、ITO測定結果が満たすべき条件は、例えば、ITO透明電極の仕事関数が5.0eV以上であること、清浄性はXPSにより測定される炭素量として5 atomic %以下であること、平坦性はAFMにて測定される $R_{\text{rms}}$ の値として20nm以下であることなどと設定することができる。

【0024】ITO透明電極にプラズマ照射などの表面処理を行うことにより、表面の仕事関数が大きくなると共に表面を清浄化することができる。しかし、透明電極の初期状態にばらつきがあることは避けられず、一律に表面処理条件を最適化したり再現性ある表面処理を行うことは困難であった。例えば、プラズマやイオンビームを照射した場合には、電極表面のモロロジを変化させてしまい電極表面の平坦性を損なってしまう場合がある。そのため、同一条件でプラズマなどを利用した表面処理を行うことで、電極表面の仕事関数と清浄性および平坦性を同時に再現性良く制御することは難しい。

【0025】本発明では、上記のように真空一貫プロセスにおいて、表面処理から表面の特性測定、有機層形成などを行う。特に、常時、ある一定の特性を有する透明電極表面上に有機層が形成されるように表面処理後、有機層形成前に透明電極の表面特性を測定して確認している。従って、一定範囲の特性を有する透明電極表面に形成される有機層の密着性向上や正孔注入効率向上を安定的に図ることが可能となり、その結果、特性の良い（低電圧駆動、非発光部が少ない、長寿命）有機EL素子を再現性よく得ることができる。

【0026】ここで、プラズマ処理による表面処理によ

ってITO透明電極表面が清浄化されるのは、プラズマ中のイオンによるスパッタクリーニング効果と中性酸素活性種による炭素汚染層除去効果とによる。

【0027】また、ITO透明電極表面の仕事関数が大きくなるのは、プラズマ照射によりITO表面近傍(10nm以下の層)の $\text{SnO}_2$ が選択的にエッチングされ、Sn濃度が低下すること、および、O濃度が低下することによる。さらに、プラズマ生成ガスに $\text{CF}_4$ などのフッ素含有ガスを添加したり、又は、プラズマ中にポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素含有物質を配置することにより、プラズマ中にフッ素原子を生成させ、これをITO表面に吸着させることにより、仕事関数をさらに大きく(7eV程度まで)することもできる。

【0028】

【発明の実施の形態】以下、図面を用いてこの発明の好適な実施の形態(以下実施形態という)について説明する。

【0029】[実施形態1]図1は、本発明の実施形態1に係る有機EL素子の製造装置の構成例を示している。この製造装置は、プラズマ発生源を備えた前処理室(表面処理室)100、透明電極表面の仕事関数、清浄性および平坦性を測定する装置を備えた測定室200、正孔輸送層や発光層、電子輸送層などの有機層を真空蒸着法により形成する有機層形成室300、陰極となる金属電極を蒸着する金属電極形成室400、および、作製した素子を封止する封止室500を備える。

【0030】各処理室は、この順に並んでおり、互いに隣接する処理室(容器)間にはそれぞれゲートバルブ600が取り付けられている。また、各処理室には図示しない真空ポンプが取り付けられており、各処理室を独立して真空排気することが可能となっている。素子基板は、トランスファロッドによって真空雰囲気を破ることなく、つまり大気に曝されることなく各処理室間を搬送することができる。なお、図1の装置では、有機層形成室300は、単一処理室としているが、複数室としてもよい。例えば、有機層は正孔輸送層と発光層からなる2層構造や、正孔輸送層、発光層及び電子輸送層からなる3層構造が採用されることがあり、その場合には、各層を別の形成室にて形成しても良い。また、金属電極形成室400と封止室500との間に、保護膜を形成する保護膜形成室を設けてもよい。

【0031】以上のような装置を用いた有機EL素子の製造について、以下図2をさらに参照して説明する。

【0032】まず、ガラスなどの透明基板1上に透明導電性材料としてITOを用い透明電極2を形成する。次に、前処理室100にこの透明電極2の形成された基板1を搬入する。前処理室100では、搬入された基板1を基台11上に保持し、該基板1の透明電極表面に対して表面処理を行う。

【0033】表面処理は、プラズマ照射、ラジカルビー

ム照射、イオンビーム照射などを用いることができ、本実施形態1ではプラズマ照射による表面処理を行っている。前処理室100にはプラズマ生成室10が連結されていて、室内100に導入されるガスは例えば、 $\text{Ar}$ 、 $\text{O}_2$ 混合ガス(1:1)であり、またマイクロ波(例えば2.45GHz)と電磁石12によって与えられる磁場とによってECRプラズマを発生し、これが基台11上にあるITO電極表面に照射される。プラズマ照射の場合、プラズマ源は13.56MHzのRF(高周波)プラズマか、2.45GHzのマイクロ波を利用したECRプラズマのいずれでも採用可能であるが、ECRプラズマは、RFプラズマに比べて基板へ入射するイオンのエネルギーを低くすることができるため、基板10へのダメージを低減することができる点でRFプラズマより好ましい。またECRプラズマによりITO電極表面の平坦性の改善効果を得ることもできる。

【0034】ITO透明電極表面に対して、例えばプラズマ処理を用いた表面処理を行うことにより、プラズマ中のイオンによるスパッタクリーニング効果と中性酸素活性種による炭素汚染層除去効果とによって透明電極表面が清浄化される。また、プラズマ照射によりITO表面近傍(10nm以下の層)の $\text{SnO}_2$ が選択的にエッチングされ、Sn濃度が低下すること、および、O濃度が低下すること等によりITO透明電極表面の仕事関数が大きくなる。またさらに、プラズマ生成ガスに $\text{CF}_4$ などのフッ素含有ガスを添加したり、又は、プラズマ中にポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素含有物質を配置することにより、プラズマ中にフッ素原子を生成させ、これをITO表面に吸着させれば、仕事関数をさらに大きく(7eV程度まで)することもできる。

【0035】表面処理後、図2(b)に示すような被処理基板1は、開放されたゲートバルブ600を通して測定室200内に大気に曝されることなく搬入される。測定室200は、被表面処理基板を基台21上に保持し、表面処理後のITO電極表面の清浄性、平坦度及び前記透明電極の仕事関数を測定する。

【0036】測定室200において、ITO表面の仕事関数(イオン化ポテンシャル)測定装置には、仕事関数用紫外光源20、仕事関数用2次電子検出器22、及び図示しない分光器、石英レンズ等を備える測定装置が用いられている。紫外光源20には重水素ランプを用い、光源20からの光を図示しない分光器を用いて分光し、同様に図示しない石英レンズで集光した後、石英窓を通して真空状態にされた測定室200内の基板1に照射し、基板1のITO表面から放出される光電子を電子増倍管である2次電子検出器22で検出する。この仕事関数測定装置では、基板1のITO表面から光電子が放出されはじめる紫外光のしきい値エネルギーを測定することで、ITO表面の仕事関数を求める。この測定は、紫外線を測定対象物に照射することで、対象物の最外殻電

子が励起されるため、放出された光電子を検出してそのときの光源波長を測定すれば対象物の仕事関数（イオン化ポテンシャル）を求めることができるという原理を利用している。

【0037】次に、ITO表面の清浄性の測定装置としては、本実施形態1では、MgK $\alpha$ 線を用いたX線光源24と円筒ミラー型エネルギー分析器26を備えるX線光電子分光（XPS）システムを用いている。このシステムでは測定対象物の表面から数nmまでの深さの組成分析が可能であり、X線光源24からのX線を石英窓から測定室200内に照射し、発生する光電子を分析器26で検出分析することで、プラズマ照射前後のITO表面の炭素量を測定し、表面の清浄性を炭素による汚染度（炭素含有量）によって調べる。

【0038】ITO表面の平坦性は、原子間顕微鏡（AFM）又は走査トンネル顕微鏡（STM）により測定することができる。本実施形態1では、この内、測定室200内に設置したAFMユニット28を用いて測定する。このAFMユニット28は、直線導入端子に取り付けられていて、仕事関数や清浄性の測定時には、それらの測定の妨げにならない位置に退避される。そして、平坦性の測定時に基台21上の基板1に近傍に移動し、ITO表面に探針を近接させて表面の凹凸を測定する。

【0039】測定室200での測定結果が、所定条件、例えば、仕事関数が5.0eV以上であること、清浄性はXPSにより測定される炭素量として5atomic%以下であること、平坦性はAFMにて400 $\times$ 400 $\mu$ mのAFM画像中の最高点と最低点との差で定義した $R_{\text{rms}}$ の値で20nm以下であることを満たしている場合、被測定基板1は、隣接する有機層形成室300にゲートバルブ600を経て大気に曝されることなく搬送される。

【0040】測定結果がこの様な所定条件を満たしていない場合には、透明電極2の表面状態が適正でないことを意味しているため、その基板1は有機層形成室300に搬送することなく、製造ラインから取り除くことが好ましい。

【0041】有機層形成室300は、例えば真空蒸着室であり、内部には有機層4の蒸着材料源が配置されている（蒸着源32、蒸着源34等）。そして、これらの蒸着源32、34から蒸発させた有機材料を表面処理後の透明電極2の表面に付着させ、図2（c）に示すように有機層4を形成する。有機層4を例えば正孔輸送層と発光層の2層構造、正孔輸送層、発光層及び電子輸送層の3層構造などとする場合、この有機層形成室300は、各層用にそれぞれ別の形成室から構成してもよい。

【0042】有機層4を形成した後、基板1をゲートバルブ600を経て隣接する金属電極形成室400に搬送する。この金属電極形成室400は、有機層形成室300と同様、例えば真空蒸着室であり、室内には金属電極

材料となる蒸着源が配置されている（蒸着源42、蒸着源44）。なお、金属電極6を単一材料から構成する場合には蒸着源は1つとすることができる。

【0043】金属電極形成室400内で図2（d）に示すように有機層4上に金属電極6が形成されると、基板1は次にゲートバルブ600を経て隣接する封止室500に搬送される。封止室500では、図2（e）に示すように、基板1上に形成された透明電極2、有機層4及び金属電極6によって構成される有機EL素子を覆うように封止キャップ8を被せ、この封止キャップ8を樹脂などを接着剤として用いて基板1に接着する。なお、素子の封止空間内には、素子の特性変化、特に有機層特性変化を防ぐため不活性ガス（例えばN<sub>2</sub>ガス）が封入される。

【0044】（実施例1）以下、実施例1として上述の図1に示す製造装置による有機EL素子の作成例について説明する。

【0045】まず、基板1には、三容真空社製のITO電極（160nm、10 $\Omega$ /□）付のガラス基板を用いた。この基板1を洗浄（アルカリ性の基板洗浄液で超音波洗浄→純水洗浄→エタノール超音波洗浄→アセトン超音波洗浄→イソプロピルアルコール超音波洗浄→100℃で乾燥）後、UVオゾンクリーナー（日本電子レーザ社製、NL-UV253）を用いて20分間UVオゾン処理を行った。

【0046】表面処理後との比較のため、UVオゾン処理後すみやかに基板1を前処理室100に搬入し、真空排気を行った。10<sup>-1</sup>Torr台の真空度まで真空排気後、基板1を測定室200に搬送し測定を行った。仕事関数は4.8eV、炭素量は24atomic%、表面の平坦性は400 $\times$ 400 $\mu$ mのAFM画像中の最高点と最低点との差で定義した $R_{\text{rms}}$ にして25nmであった。

【0047】この基板1を再び前処理室100に戻し、プラズマ照射によるITO電極の表面処理を行った。真空の前処理室内にガス流量調節器を通して10%O<sub>2</sub>-Ar混合ガスを流し、室内の圧力を1 $\times$ 10<sup>-1</sup>Torrとした。次いで、電磁コイルに電流を流し磁場を印加し、2.45GHzのマイクロ波を出力200Wで導波管から石英窓を通して室内に導入してECRプラズマを発生させた。発生したECRプラズマは、コイルの作る発散磁場に従って基板1の方へ拡散する。このプラズマに基板1を5分間さらした。その後、マイクロ波と磁場の印加を止め、ガス導入も止め、再び前処理室内を10<sup>-1</sup>Torr台まで真空排気した。

【0048】ECRプラズマによりITO電極の表面処理を行った後、基板1を測定室2に搬送し、再度測定を行った。測定の結果、仕事関数は5.2eV、炭素量は5atomic%、 $R_{\text{rms}}$ は18nmであった。

【0049】測定後、基板1を有機層形成室300へ搬

10

20

30

40

50

送り、ITO電極2の表面に正孔輸送層としてトリフェニルアミン4量体(TPTE)を60nm、発光層としてキノリノールアルミ錯体(Alq<sub>3</sub>)を60nm成膜し、有機層4を得た。

【0050】次に、基板1を金属電極形成室400へ搬送し、金属電極6として、MgAg電極(Mg:Ag=9:1)を200nm成膜した。

【0051】以上の成膜工程では、全て $1 \times 10^{-4}$  Torr以下の真空度にて行った。金属電極6を形成した後、 $10^{-1}$  Torr台に排気された封止室500に基板1を搬送し、その後、封止室内にN<sub>2</sub>ガスを1気圧まで導入した。あらかじめ封止室内にセットしておいた紫外硬化樹脂を周囲に塗った封止キャップ8としての封止ガラスを基板上面に接着し、容器外からガラス窓を通して紫外ランプを照射して樹脂を硬化して素子の封止を行った。

【0052】(比較例1) 比較例1として、プラズマによる表面処理を行うことなく有機EL素子を作製した。実施例1と同じ基板1を用いてこれを洗浄、UVオゾン処理した後、図1の製造装置の前処理室100内に搬入し、真空排気後、測定室200に移し、測定を行った。その結果ITO電極の仕事関数は5.2eV、炭素量は28atomic%、R<sub>ms</sub>は24nmであった。測定後、有機層形成室300にて有機層4を形成し、金属電極形成室400にて金属電極6を形成し、封止室500にて封止を行い、実施例1と同じ構造の素子を得た。

【0053】(比較例2) 比較例2として、プラズマによる表面処理時間を実施例1よりも長く実施した有機EL素子を作製した。

【0054】実施例1と同様の手順で前処理室100内で、プラズマ照射によるITO電極に対する表面処理を20分間行った。この基板1を測定室200に搬送し、ITO電極表面の特性を測定したところ、仕事関数は5.2eV、炭素量は3.5atomic%と実施例1の場合とほぼ同じであったが、R<sub>ms</sub>は27nmであり、表面処理前よりも大きくなっていた。

【0055】測定後、有機層形成室300にて有機層4を形成し、金属電極形成室400にて金属電極6を形成し、封止室500にて封止を行い、実施例1と同じ構造の有機EL素子を得た。

【0056】以上実施例1、比較例1及び2で作製した素子のそれぞれに対して、陽極(ITO電極)に正、陰極(金属電極)に負の直流電圧を印加して発光面の観察を行った。

【0057】図3に各素子の電圧(横軸)－発光輝度(縦軸)特性を示し、図4に同じ素子について初期輝度2400cd/m<sup>2</sup>にて定電流駆動したときの輝度(縦軸)の経時変化を示す(横軸－駆動時間)。図3からわかるように、プラズマ表面処理を行わない比較例1の試料が駆動に最も高い電圧を要しており特性が悪い。図4

の経時変化においても、比較例1の試料が最も輝度の低下が著しいことがわかる。

【0058】実施例1と比較例2とを比べると、図4の輝度の経時変化では両者に顕著な差はみられないものの、図3では、実施例1の試料に比べて比較例2の試料では駆動電圧が大きくなっている。このように駆動電圧が高くなったのは、比較例2の素子は、過剰な表面処理が行われる事でITO電極表面の平坦性が実施例1の試料に比べて悪くなったことにより、発光特性が低下したことを示している。

【0059】以上の比較からわかるように、実施例1のように表面処理後のITO電極が、例えば、仕事関数は5.2eV、炭素量は5atomic%、R<sub>ms</sub>は18nmを示していれば、その後有機層及び金属電極を形成して有機EL素子を製造した場合に、実施例1と同じ特性を備える素子が得られることとなる。

【0060】そこで、本実施形態1において、例えば、測定室200で測定した表面処理後のITO電極の特性が、仕事関数5.0eV以上であること、清浄性はXPS測定下の炭素量として5atomic%以下であること、平坦性はAFM測定下のR<sub>ms</sub>の値として20nm以下であることを表面処理後の透明電極の特性が満たすべき条件と設定し、これを満たす場合にのみ、その基板に対し素子製造を行えば、再現性よく有機EL素子を形成することができる。また、表面特性が適正値でないITO電極を備える基板に対してはその後の製造処理を実行しないこととすれば、素子を最後まで製造した後に不良品を除く必要がなくなるため、有機層、金属電極形成工程での製造効率を高めることができ、製品の歩留まり向上に寄与する。

【0061】(実施例2) 図1に示す装置において、プラズマ源のプラズマ生成室10の内壁に、意図的にフッ素樹脂(ポリテトラフルオロエチレン)シート(厚さ1mm)を配し、前処理室100内で、実施例1と同じ基板1を用い、同じ条件で生成したプラズマを同じ時間(5分)照射して表面処理を行った。

【0062】この後、基板1を測定室200に搬送し、測定を行った。測定の結果、仕事関数は6.2eV、炭素量は4.5atomic%、R<sub>ms</sub>は19nmであった。なお、XPSにより測定されたITO表面のフッ素量は12atomic%であった。このように、プラズマ生成室10にポリテトラフルオロエチレンを配してプラズマ処理を行うことでITO電極表面にフッ素が導入され、その結果仕事関数が著しく大きくなることがわかった。

【0063】測定室200での測定終了後、実施例1と同様に有機層4及び金属電極6を形成し、さらに封止を行った。

【0064】このようにして実施例2で作製した有機EL素子は、電極間に直流電圧を印加したところ、実施例

1と同じ電圧-輝度特性、半減寿命を示した(図3及び図4参照)。この結果は、ITO表面のフッ素は、素子特性に直接悪影響を及ぼさないことを示す。さらには、正孔注入層のHOMOレベル(本実施例2に用いたTPTEでは約5.0 eV)よりもITO電極側の仕事関数は大きければ正孔の注入効率は改善され、その大きさによらないことを示している。

【0065】実施例2では、フッ素量は特性に悪影響を及ぼさなかったが、多量のフッ素は素子の動作の不安定性などの悪影響を与えると考えられる。その点から、フッ素量は20 atomic %以下に止めた方が好ましいと考えられる。

【0066】[実施形態2] 図5は、実施形態2に係る有機EL素子の製造装置の構成例を示している。上記実施形態1では、各真空処理室を直線的に配しているが、本実施形態2の製造装置では、中央に基板搬送用の搬送ロボットを備えた搬送室700を設け、その周囲に複数の真空処理室を配したプロセスの効率化が可能なマルチチャンバ型とした。真空処理室は、概ね実施形態1と同様であるが、外部からのITO付き基板1の取り入れ、取り出しを行う予備室710と、プラズマ処理室110、AとBの二つの測定室210、AとBの二つの有機層形成室310、金属電極形成室410及び封止室510を備える。

【0067】2つの測定室210の内、測定室AにはX線光電子分光装置と紫外光電子分光装置とが設けられ、プラズマ表面処理後のITO表面の清浄性と仕事関数の測定を行う。測定室BにはAFMユニットが設けられ、プラズマ表面処理後のITO表面の平坦性を測定する。

【0068】2つの有機層形成室310の内、有機層形成室Aでは正孔輸送層を真空蒸着により形成し、有機層形成室Bでは該正孔輸送層上に、発光層および電子輸送層を同じく真空蒸着により形成する。

【0069】また、本実施形態2においても、金属電極6を形成した後、素子の封止を行う装置構成としたが、金属電極形成後、該金属電極及び素子全体を覆うような保護膜を形成する保護膜形成室をさらに追加した装置構成としてもよい。

【0070】

【発明の効果】以上説明したように、本発明においては、陽極となる透明電極上に有機層を形成する前に該透明電極に表面処理を施し、表面処理後の透明電極表面の仕事関数、清浄性、平坦性を測定し、特性が所定条件を満たすかどうか確認し、満たしている場合に有機層、金属電極を形成し、有機EL素子を作製する。

【0071】従って、特性が同程度の透明電極表面に有機層、金属電極を形成することができ、低電圧で駆動可能でかつ均一な発光面を有し、長時間の駆動に対して輝度低下の少ない有機EL素子を再現性よく得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の本実施形態1に係る有機EL素子の製造装置の構成例を示す図である。

【図2】 本発明に係る有機EL素子の製造工程を示す図である。

【図3】 実施例及び比較例に係る有機EL素子の電圧-発光輝度特性を示す図である。

【図4】 実施例及び比較例に係る有機EL素子の輝度の経時変化を示す図である。

【図5】 本発明の本実施形態2に係る有機EL素子の製造装置の構成例を示す図である。

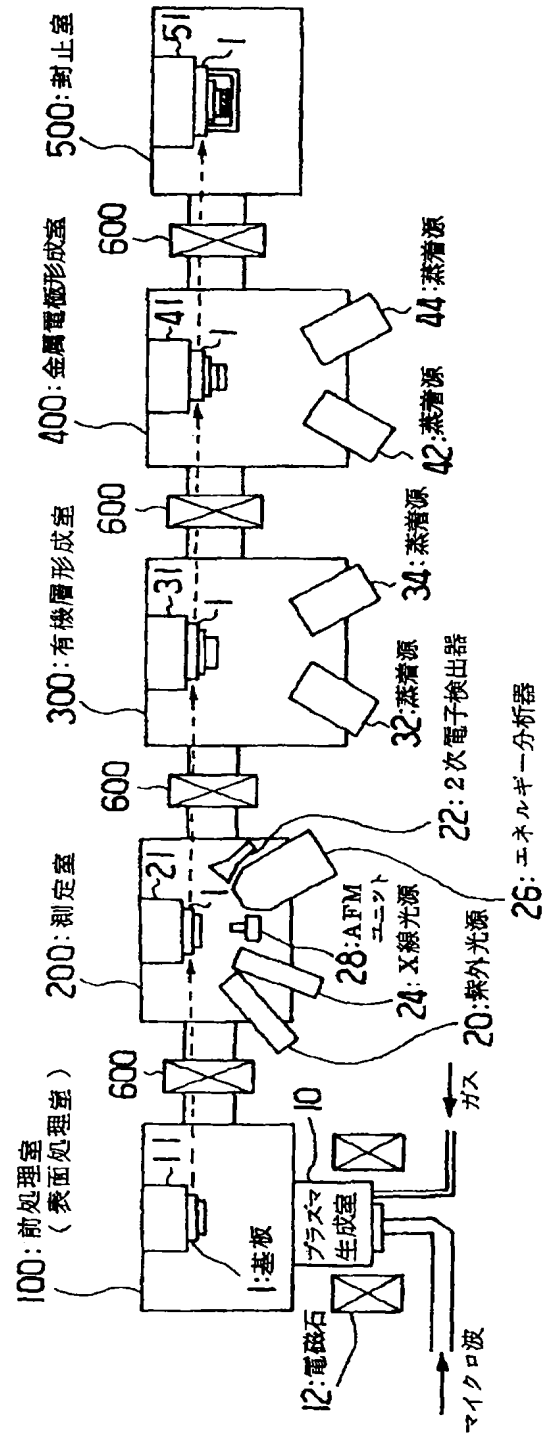
【図6】 一般的な有機EL素子の構成を示す図である。

【符号の説明】

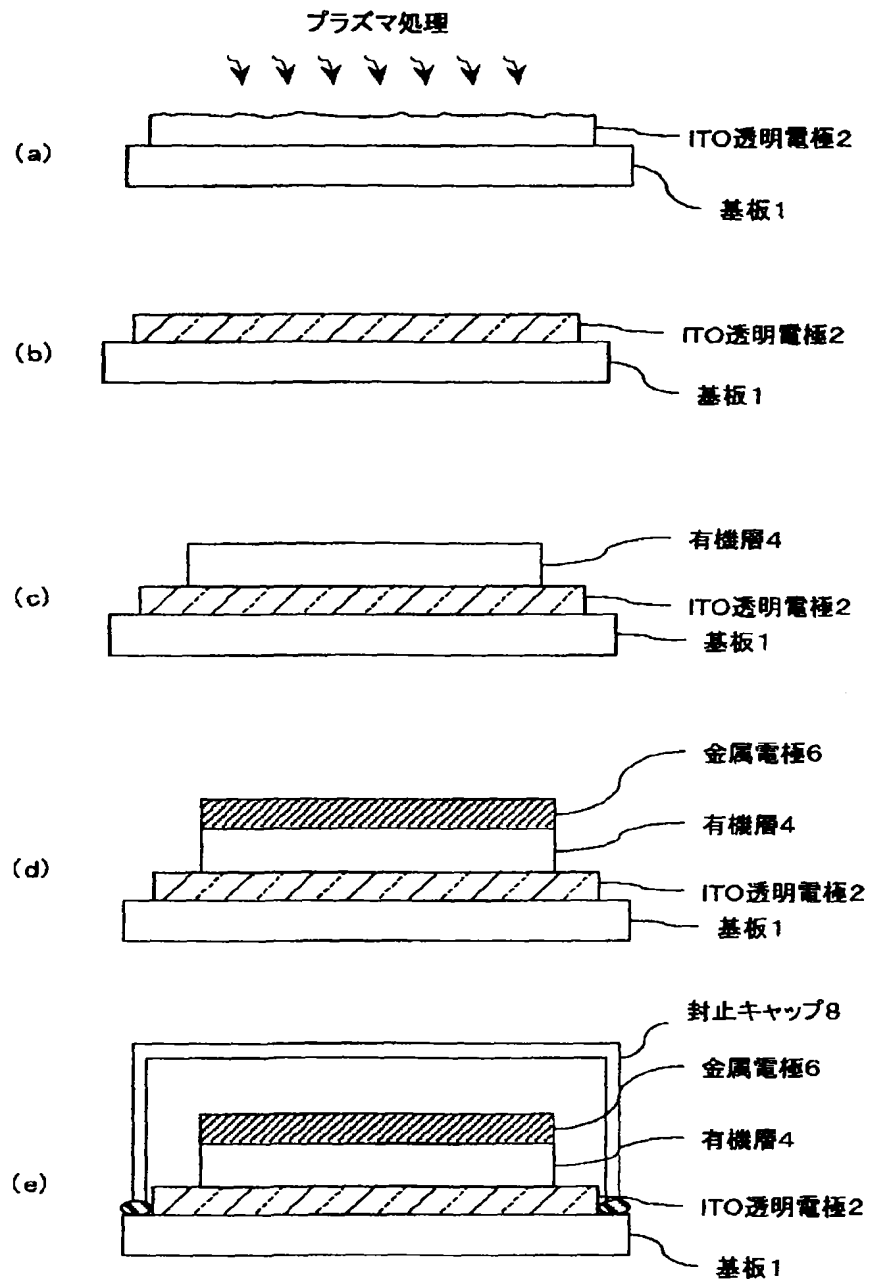
1 基板、2 透明電極(ITO電極、陽極)、4 有機層、6 金属電極(陰極)、8 封止キャップ、10 プラズマ生成室、12 電磁石、20 仕事関数用紫外光源、21, 31, 41, 51 基台、22 仕事関数用2次電子検出器、24 XPS用X線光源、26 XPS用エネルギー分析器、28 AFMユニット、32, 34 有機層用蒸着源、42, 44 金属電極用蒸着源、100 前処理室、110 プラズマ処理室、200, 210 測定室、300, 310 有機層形成室、400, 410 金属電極形成室、500, 510 封止室、600 ゲートバルブ、700 搬送室、710 真空予備室。



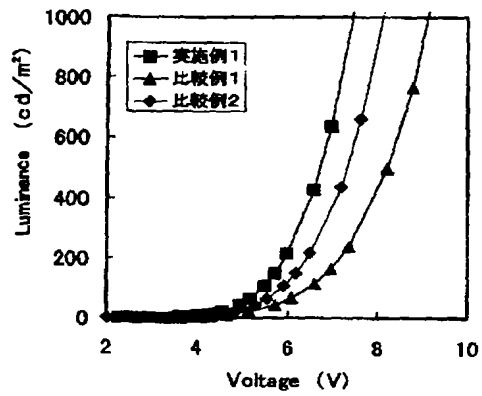
【図 1】



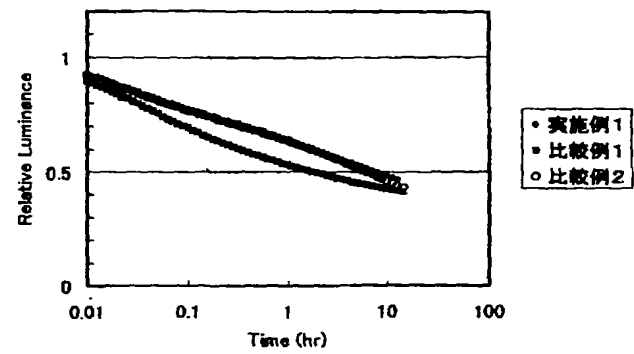
【図 2】



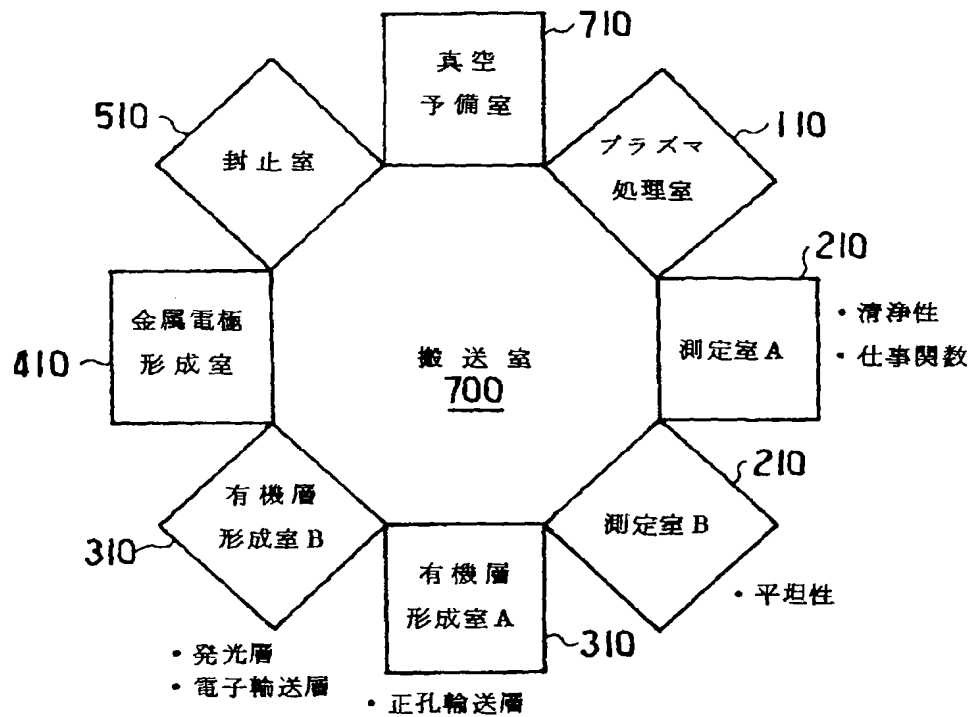
【図 3】



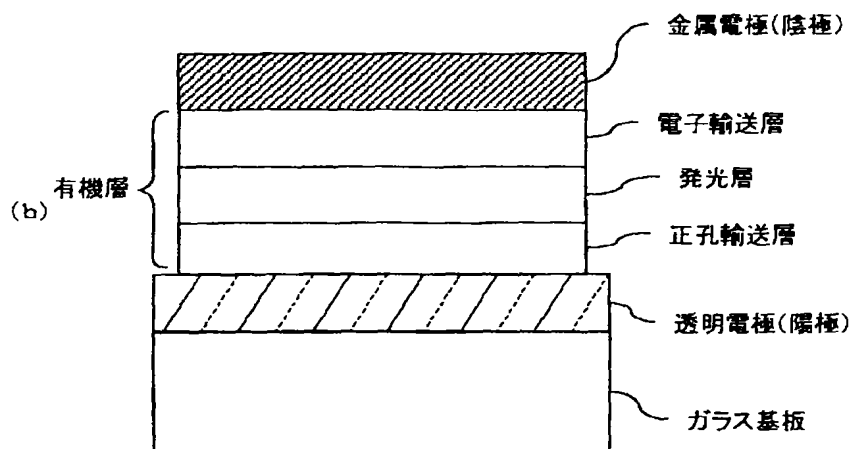
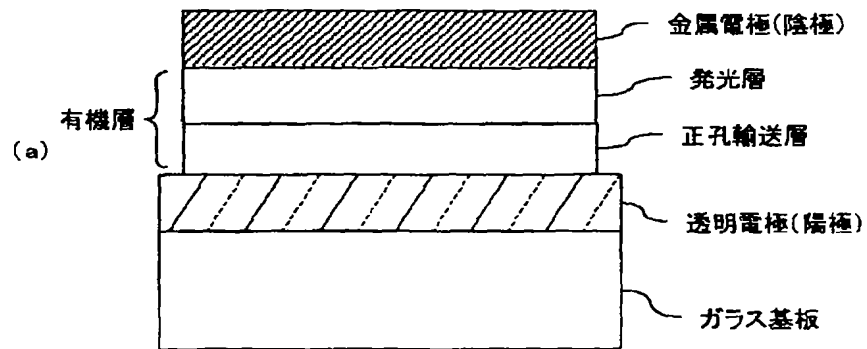
【図 4】



【図 5】



【図6】



フロントページの続き

(72)発明者 多賀 康訓  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

Fターム(参考) 3K007 AB01 AB03 AB06 AB11 AB18  
BB01 CA01 CB01 DA01 DB03  
EB00 FA01